

-Mn-Ir を用いた反強磁性/強磁性積層膜の面内および垂直交換磁気異方性に関する研究

著者	高橋 宏和
号	57
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第4778号
URL	http://hdl.handle.net/10097/61711

氏名	たかはし ひろかず 高橋 宏和
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成25年3月27日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）電子工学専攻
学位論文題目	γ -Mn-Ir を用いた反強磁性/強磁性積層膜の面内および垂直交換磁気異方性に関する研究
指導教員	東北大学教授 鷲尾 勝由
論文審査委員	主査 東北大学教授 鷲尾 勝由 東北大学教授 佐橋 政司 東北大学教授 大野 英男 東北大学教授 白井 正文 東北大学准教授 角田 匡清

論文内容要旨

第1章 序論

反強磁性／強磁性積層膜で観測される交換磁気異方性は，強磁性層の磁化の向きを一方向に固定する働きを有し，ハードディスク装置の再生ヘッドや、磁気ランダムアクセスメモリの記憶セルなどの薄膜磁気デバイスに応用されている．磁化の固定方向は，用途に応じて薄膜面内もしくは膜面垂直方向となるが，いずれの場合にも大きな交換磁気異方性を実現することが，薄膜磁気デバイスの性能向上のために必要である．しかしながら，交換磁気異方性の微視的な発現機構は未だ完全には解明されておらず，特に膜面垂直方向の交換磁気異方性を増強するための主導原理については，ほとんど明らかとなっていない．本研究では反強磁性材料に γ -Mn-Ir 合金を用いた反強磁性／強磁性積層膜（以下，交換結合膜）について，強磁性材料を系統的に変化させた試料の面内・垂直交換磁気異方性ならびに積層膜のスピン構造を調査することで，面内および垂直交換磁気異方性の発現メカニズムならびに大きな交換磁気異方性を誘導するための交換結合膜の材料設計指針の検討を行った．

第2章 実験方法

本章では，本研究で用いた金属薄膜・積層膜の成膜方法並びに構造解析，磁気測定法に関して記述している．全ての試料は RF/DC マグネトロンスパッタリング法を用いて成膜した．成膜後の試料に高真空下で磁場中熱処理を施し，交換磁気異方性を誘導した．

第3章 Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の強磁性層の結晶構造と面内交換磁気異方性

本章では Mn-Ir / Fe-Co-Ni 面内交換結合膜の面内交換磁気異方性と強磁性材料の物性の関係について記述している．Fig. 1 には γ -Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の面内一方向磁気異方性定数 J_K^{in} の強磁性組成依存性を示す．Fig. 1 のように J_K^{in} は強磁性層組成によって 0.01 erg/cm^2 から 0.5 erg/cm^2 まで大きく変化した．特に強磁性層の体心立方格子 (bcc) と面心立方格子 (fcc) の相境界で J_K^{in} が大きく変化したことから，今までの交換磁気異方性の理論では全く考慮されることのなかった強磁性層の結晶構造が交換磁気異方性に大きな影響を与えることが明らかになった．fcc よりも bcc の強磁性材料を用いた

場合に大きな J_K^{in} が得られ, bcc 領域では Co 組成の増加に伴って J_K^{in} が増大した.

第4章 Mn-Ir / FM (FM = Fe-Co, Co-Ni, Ni-Fe)

積層膜のスピ構造と面内交換磁気異方性

本章では面内交換磁気異方性と積層膜のスピ構造との関係について記述している. まず Mn-Ir / FM (FM = Ni-Co, Co-Fe, Fe-Ni) 面内交換結合膜について, バルク状態からのスピ構造変化に対応する非補償反強磁性スピンを大型放射光施設 SPring-8 における X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を用いて系統的に調査し, 第一原理計算による算出結果との比較を行った. その結果, 非補償反強磁性スピンの大きさおよび誘導方向が強磁性組成によって変化すること, 界面近傍の Mn スピンが回転することで反強磁性スピンの

補償状態が破れ, 非補償反強磁性スピが生じることが明らかになった. この結果から, 非補償反強磁性スピンの大きさ, 方向が界面のスピ構造を強く反映することが示された. 次に, 非補償反強磁性スピと交換磁気異方性との関係を調査した. Fig. 2 に Mn-Ir / bcc-Fe-Co および Mn-Ir / fcc-Co-Ni 積層膜の J_K^{in} 対有効非補償スピ $|\text{XMCD}/\text{Abs}|$ のプロットを示す. $|\text{XMCD}/\text{Abs}|$ は積層膜界面に生じる非補償スピの総量に対応する量であり, XMCD スペクトルのピーク分離により算出した. Fig.2 より, bcc-FM を用いた場合には $|\text{XMCD}/\text{Abs}|$ と J_K^{in} との間に正の相関関係が得られたが, fcc-FM を用いた場合には両者の間に単純な相関が存在しないことがわかる. 非補償反強磁性スピの大きさと J_K^{in} との対応関係は強磁性層の結晶構造に依存し, 従来理論のような単純な比例関係にならないことが示された. 続いて Heisenberg モデルに基づいてスピ構造計算を行い, 反強磁性層内部のスピ構造と交換磁気異方性の関係について検討を行った. 計算結果と実験結果の比較から, bcc-FM を用いた場合には Co 組成が増加するほど Mn スピンと FM スピンの交換積分 $J^{\text{interface}}$ が増加することが明らかになった. また, 交換結合膜において FM スピンが反転すると反強磁性層内部にスピのねじれ構造が誘起されること, ならびに J_K^{in} が大きな bcc-FM を用いた場合の方が fcc-FM を用いた場合よりも反強磁性層内部の深い領域まで大きなスピのねじれが誘導されることが示された. この結果から, 反強磁性層内部のスピのねじれ構造と J_K^{in} との対応関係が見いだされた. 以上の結果を基に, 積層膜のスピ構造の対称性が低く, かつ積層界面の交換結合が強いほど大きな面内交換磁気異方性を得られるという高性能化指針を提案した.

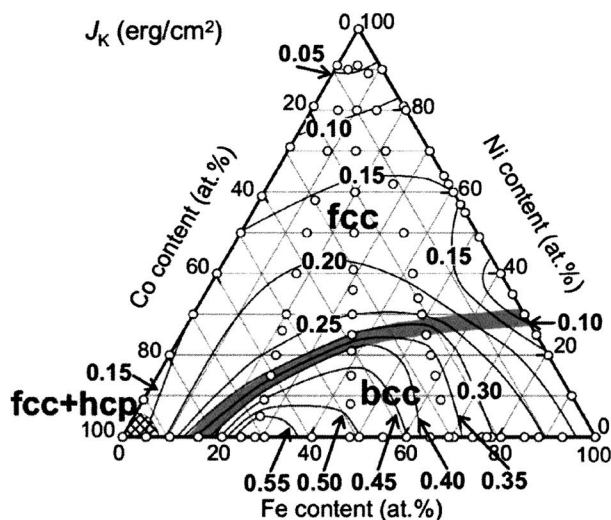


Fig. 1 In-plane unidirectional anisotropy constant, J_K^{in} of γ -Mn-Ir/Fe-Co-Ni bilayers. Black solid lines plot contour lines of J_K^{in} . Thick gray line indicates phase boundary between fcc- and bcc-structure of FM layer.

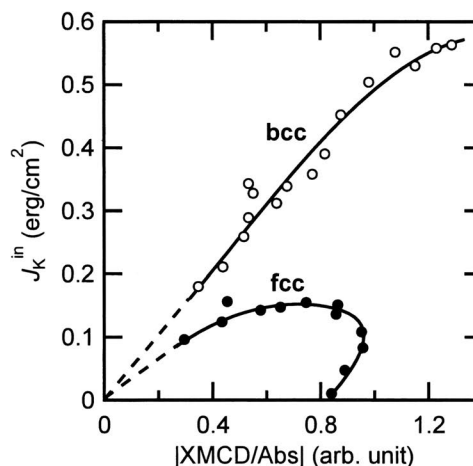


Fig. 2 Relationship between the magnitude of XMCD signal, $|\text{XMCD}/\text{Abs}|$, and the unidirectional anisotropy constant, J_K^{in} , for MnIr/bcc-Fe-Co and MnIr/fcc-Co-Ni bilayers. The lines are visual guides.

第5章 Mn-Ir / Fe-Co / FM^{perp} (FM^{perp} = [Pt/Co]_n, [Pd/Co]_n) 積層膜の垂直交換磁気異方性

本章では垂直交換磁気異方性の強磁性層材料依存性の調査から、面内および垂直交換磁気異方性の相違について記述している。第3章、第4章の面内交換結合膜と同様に γ -Mn-Ir を用いた垂直交換結合膜を作製し、垂直交換磁気異方性の強磁性材料依存性を調査した。強磁性層に用いた [Co/Pt]_n, [Co/Pd]_n 多層膜中の Pt, Pd 層膜厚が厚い場合ならびに Co 層膜厚が薄い場合には熱処理時の磁化の熱揺らぎによって垂直一方向磁気異方性定数 J_K^{perp} が減少することを明らかとした。続いて、 J_K^{perp} の強磁性組成依存性を調査した。Fig.3 には Mn-Ir / Fe-Co / Pt / [Co/Pt]₄ 垂直交換結合膜の J_K^{perp} の界面 Fe-Co 層組成依存性を示す。強磁性多層膜の各層の膜厚は磁化の熱擾乱が小さくなるように選んだ。Fig. 3 には比較のために Mn-Ir / Fe-Co 面内交換結合膜の J_K^{in} の Fe-Co 組成依存性も併せて示した。界面強磁性層が Fe₃₀Co₇₀ の場合に今までのいずれの報告値よりも大きな $J_K^{\text{perp}} > 0.4 \text{ erg/cm}^2$ が得られた。 J_K^{in} と J_K^{perp} の Fe-Co 組成依存性を比較すると、両者の傾向は似通っており、面内および垂直交換磁気異方性が同様のメカニズムによって誘導されるという可能性が示唆された。ただし fcc の強磁性層を用いた場合と比較して bcc の強磁性層を用いた場合には J_K^{in} より J_K^{perp} の方が顕著に小さく、面内交換磁気異方性と垂直交換磁気異方性の強磁性層結晶構造依存性が完全には一致しないことがわかった。

第6章 反強磁性/強磁性積層膜の結晶構造の回転対称性が垂直交換磁気異方性に及ぼす影響

本章では Mn-Ir の結晶配向が垂直交換磁気異方性に及ぼす影響について検討している。Mn-Ir 層の配向が (111) の場合と (110) の場合で J_K^{perp} の違いは 0.1 erg/cm^2 未満と僅かで有り、(110) 配向が (111) 配向の場合よりも 0.15 erg/cm^2 以上大きな J_K^{in} が得られる面内交換磁気異方性の結果とは異なることを明らかとした。第5章、第6章で得られた垂直交換磁気異方性の強磁性層組成依存性と結晶配向依存性、更には面内交換磁気異方性との相違は、第4章で論じた積層膜のスピン構造の回転対称性と交換磁気異方性の関係を考慮することで定性的に説明することができた。この結果から、 γ -Mn-Ir を用いた交換結合膜における面内および垂直交換磁気異方性の発現機構が同一である可能性を指摘した。以上の結果を基に、大きな面内および垂直交換磁気異方性を誘導するための交換結合膜の統一的な材料設計指針を提言した。

第7章 結論

以上要するに、本論文は、 γ -Mn-Ir を用いた反強磁性/強磁性積層膜の交換磁気異方性とスピン構造との相関関係の明確化を通じて交換磁気異方性の微視的な発現機構に関する知見を与え、交換結合膜の高性能化のための材料設計指針を確立したものである。本研究から、強磁性層の結晶構造が交換磁気異方性に大きな影響を与えるという新しい知見が得られた。この結果は反強磁性層内部のスピンのおねじれ

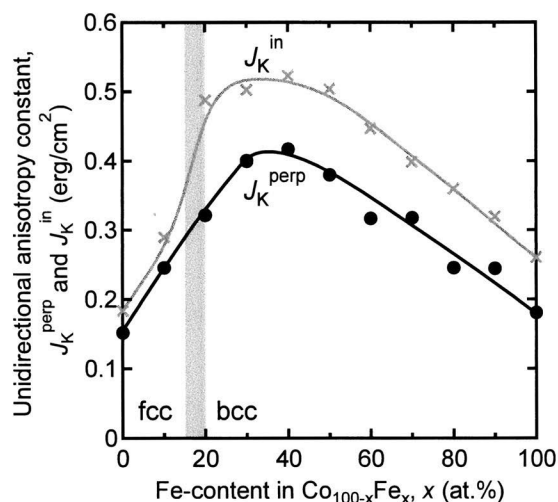


Fig. 3 Perpendicular unidirectional anisotropy constant, J_K^{perp} , in the Mn-Ir (5 nm)/Fe_xCo_{100-x} (1.2 nm)/Pt (1 nm)/[Co (0.6 nm)/Pt (1 nm)]₄ perpendicular exchange biased films, and in-plane unidirectional anisotropy constant, J_K^{in} , in the Mn-Ir (5 nm)/Fe_xCo_{100-x} (4 nm) in-plane exchange biased films. The lines are eye-guides, and gray thick band represents the phase boundary between fcc and bcc Fe-Co.

の大きさと一方向磁気異方性定数が対応し、積層膜のスピン構造の対称性が低いほど反強磁性層内部に大きなねじれが誘導されるというモデルを用いて定性的に理解することが出来た。本論文の結果を基に、積層膜の回転対称性が低く、かつ界面における強磁性スピンと反強磁性スピンの交換結合が大きな材料を選択することで大きな交換磁気異方性が得られる、という面内および垂直交換結合膜の高性能化の為に統一的设计指針が示された。

論文審査結果の要旨

反強磁性／強磁性積層膜で観測される交換磁気異方性は、強磁性層の磁化の向きを一方向に固定する働きを有し、ハードディスク装置の再生ヘッドや、磁気ランダムアクセスメモリの記憶セルなどの薄膜磁気デバイスに応用されている。磁化の固定方向は、用途に応じて薄膜面内もしくは膜面垂直方向となるが、いずれの場合にも大きな交換磁気異方性を実現することが、薄膜磁気デバイスの性能向上のために必要である。しかしながら、交換磁気異方性の微視的な発現機構は未だ完全には解明されておらず、特に膜面垂直方向の交換磁気異方性を増強するための主導原理については、ほとんど明らかとなっていない。著者は、反強磁性材料に γ -Mn-Ir 合金を用いた反強磁性／強磁性積層膜（以下、交換結合膜）について、強磁性材料を系統的に変化させた場合の交換磁気異方性と積層膜内部のスピンの構造との相関について検討を行い、面内ならびに垂直方向に大きな交換磁気異方性を誘導するための交換結合膜の材料設計指針を明確化した。本論文はその研究成果についてまとめたもので、全文 7 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景及び目的を述べている。

第 2 章では、本研究で用いた薄膜試料の作製法、構造解析法、磁気測定法に関して記述している。

第 3 章では、交換結合膜の面内交換磁気異方性の強磁性材料依存性に関して述べている。強磁性 Fe-Co-Ni 合金層の結晶構造が面内一方向磁気異方性定数 J_K^m に大きな影響を与え、特に体心立方構造を有し Co 組成に富む強磁性層で 0.65 erg/cm^2 に及ぶ大きな J_K^m が得られることを明らかにしている。これは、従来の交換磁気異方性の理論では全く考慮されていなかった実験結果であり、極めて重要な知見である。

第 4 章では、交換結合膜の面内交換磁気異方性とスピン構造との関係について検討している。放射光 X 線磁気円二色性による非補償反強磁性スピンの測定結果と、交換結合膜のスピン構造の第一原理計算の結果との対比を通じて、界面近傍の Mn スピンがバルク中での安定方向から回転することで非補償反強磁性スピンが生じていることを明らかとした。また、非補償反強磁性スピンの大きさと J_K^m との対応関係は強磁性層の結晶構造に依存し、従来理論のような単純な比例関係にはないことを見出した。さらに、交換結合膜の磁化過程のハイゼンベルグ模型によるシミュレーションを通じ、反強磁性層内部におけるスピンのねじれ構造と J_K^m との対応関係を明らかとした。第 3 章と第 4 章の知見から、積層膜のスピン構造の面内回転対称性が低く、かつ積層界面の交換結合が強い場合に大きな面内交換磁気異方性が誘導されることを論じている。

第 5 章では、交換結合膜の垂直交換磁気異方性と強磁性材料との関係について記述している。強磁性層に用いた Co/Pt, Co/Pd 多層膜中の Co 層が薄い場合ならびに Pt, Pd 層が厚い場合には熱処理時の磁化の熱揺らぎによって垂直一方向磁気異方性定数 J_K^{perp} が減少することを明らかとした。また、積層界面に配置した強磁性 Co-Fe 合金層の組成に対する J_K^{perp} の変化は、第 3 章で示した J_K^m の変化と同様の傾向を示し、 $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ の場合に、過去のいずれの報告値よりも大きな 0.4 erg/cm^2 に及ぶ J_K^{perp} が得られた。これは工学応用上、非常に有益な知見である。

第 6 章では γ -Mn-Ir の結晶配向が垂直交換磁気異方性に及ぼす影響について検討している。(110)配向と(111)配向の場合の J_K^{perp} の違いはわずかであり、(110)配向が(111)配向の場合よりも 0.15 erg/cm^2 以上大きな J_K^m が得られる面内交換磁気異方性の結果とは異なることを見出した。第 4 章で論じた積層膜のスピン構造の回転対称性と交換磁気異方性との関係は、第 5 章と第 6 章の実験結果の定性的な説明にも適用可能であり、 γ -Mn-Ir を用いた交換結合膜における面内および垂直交換磁気異方性の発現機構が同一である可能性を指摘した。以上の結果を基に、大きな交換磁気異方性を誘導するための交換結合膜の材料設計指針を提言した。

第 7 章は結論である。

以上要するに本論文は、 γ -Mn-Ir を用いた反強磁性／強磁性積層膜の交換磁気異方性とスピン構造との相関関係の明確化を通じて交換磁気異方性の微視的な発現機構に関する知見を与え、交換結合膜の高性能化のための材料設計指針を確立したものであり、薄膜磁気工学ならびに電子工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。